



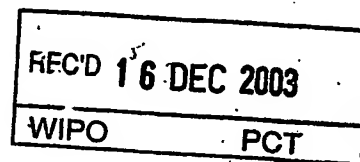
Europäisches
Patentamt

European
Patent Office

Rec'd PCT/PTO 03 MAY 2005 #2
PCT/EP 03 / 50817

Office européen
des brevets

13.11.03



Bescheinigung

Certificate

Attestation

Die angehefteten Unterla-
gen stimmen mit der
ursprünglich eingereichten
Fassung der auf dem näch-
sten Blatt bezeichneten
europäischen Patentanmel-
dung überein.

The attached documents
are exact copies of the
European patent application
described on the following
page, as originally filed.

Les documents fixés à
cette attestation sont
conformes à la version
initialement déposée de
la demande de brevet
européen spécifiée à la
page suivante.

Patentanmeldung Nr. Patent application No. Demande de brevet n°

02406007.1



Der Präsident des Europäischen Patentamts;
Im Auftrag

For the President of the European Patent Office

Le Président de l'Office européen des brevets
p.o.

R C van Dijk

BEST AVAILABLE COPY



Anmeldung Nr:
Application no.: 02406007.1
Demande no:

Anmeldetag:
Date of filing: 21.11.02
Date de dépôt:

Anmelder/Applicant(s)/Demandeur(s):

Ciba Specialty Chemicals Holding Inc.
Klybeckstrasse 141
4057 Basel
SUISSE

Bezeichnung der Erfindung/Title of the invention/Titre de l'invention:
(Falls die Bezeichnung der Erfindung nicht angegeben ist, siehe Beschreibung.
If no title is shown please refer to the description.
Si aucun titre n'est indiqué se référer à la description.)

Optisch variable Pigmente mit unsymmetrischem Schichtaufbau

In Anspruch genommene Priorität(en) / Priority(ies) claimed / Priorité(s)
revendiquée(s)
Staat/Tag/Aktenzeichen/State/Date/File no./Pays/Date/Numéro de dépôt:

Internationale Patentklassifikation/International Patent Classification/
Classification internationale des brevets:

C09C/

Am Anmeldetag benannte Vertragstaaten/Contracting states designated at date of
filing/Etats contractants désignées lors du dépôt:

AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR IE IT LI LU MC NL PT SE SK TR

Optisch variable Pigmente mit unsymmetrischem Schichtaufbau

- Die vorliegende Erfindung betrifft Pigmente, umfassend (a) gegebenenfalls auf einer parallelen Fläche des Kerns eine SiO_y -Schicht mit $0,95 \leq y \leq 1,8$ oder SiO_2 -Schicht, (b) auf der SiO_y -Schicht oder SiO_2 -Schicht eine SiO_x -Schicht mit $0,03 \leq x \leq 0,90$ und (c) auf der SiO_x -Schicht eine SiO_2 -Schicht, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung in Farben, Textilien, Tintenstrahldruck, Kosmetika, Lacken, Kunststoffen, Druckfarben und in Glasuren für Keramiken und Gläser.
- 10 EP-A-803549 betrifft farbige Glanzpigmente, die (a1) einen aus einem im wesentlichen transparenten oder metallisch reflektierenden Material bestehenden Kern, und (a2) mindestens eine im wesentlichen aus einem oder mehreren Siliciumoxiden bestehende Beschichtung, wobei das molare Verhältnis von Sauerstoff zu Silicium im Mittelwert von 0,25 bis 0,90 beträgt, aufweisen.
- 15 Es wurde nun überraschenderweise gefunden, dass man zu leicht gefärbten Pigmenten mit einem starken metallischen Effekt, wenn nur auf einer parallelen Fläche eines Metallkerns eine SiO_x -Schicht vorhanden ist, die sich direkt auf dem Metallkern befindet oder durch eine SiO_y -Schicht bzw. SiO_2 -Schicht vom Kern getrennt ist.
- 20 Die vorliegende Erfindung betrifft folglich Pigmente, deren Teilchen eine Länge von 2 μm bis 5 μm , Breite von 2 μm bis 2 μm und Dicke von 50 nm bis 1,5 μm sowie ein Verhältnis Länge zu Dicke von mindestens 2 : 1 aufweisen, wobei die Teilchen einen Kern aus einem metallisch reflektierenden Material mit zwei im wesentlichen parallelen Flächen, deren
- 25 Abstand die kürzeste Achse des Kernes ist, enthalten, umfassend
(a) gegebenenfalls auf einer parallelen Fläche des Kerns eine SiO_y -Schicht mit $0,95 \leq y \leq 1,8$,
(b) auf einer parallelen Fläche des Kerns oder, falls eine SiO_y -Schicht vorhanden ist, auf der SiO_y -Schicht eine SiO_x -Schicht mit $0,03 \leq x \leq 0,90$, insbesondere $0,05 \leq x \leq 0,5$, ganz
- 30 speziell $0,1 \leq x \leq 0,30$, und
(c) auf der SiO_x -Schicht eine SiO_2 -Schicht, bzw. Pigmente, deren Teilchen eine Länge von 2 μm bis 5 μm , Breite von 2 μm bis 2 μm und Dicke von 50 nm bis 1,5 μm sowie ein Verhältnis Länge zu Dicke von mindestens 2 : 1 aufweisen, wobei die Teilchen einen Kern aus einem metallisch reflektierenden Material mit zwei im wesentlichen parallelen Flächen,
- 35 deren Abstand die kürzeste Achse des Kernes ist, enthalten, umfassend
(a) gegebenenfalls auf einer parallelen Fläche des Kerns eine SiO_2 -Schicht,

(b) auf einer parallelen Fläche des Kerns oder, falls eine SiO_2 -Schicht vorhanden ist, auf der SiO_2 -Schicht eine SiO_x -Schicht mit $0,03 \leq x \leq 0,90$, insbesondere $0,05 \leq x \leq 0,5$, ganz speziell $0,1 \leq x \leq 0,30$, und

- (c) auf der SiO_x -Schicht eine SiO_2 -Schicht, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie deren
 5 Verwendung in Farben, Textilien (siehe beispielsweise EP 02405888), Tintenstrahldruck (siehe beispielsweise EP 02405888), Kosmetika (siehe beispielsweise EP 02405749), Lacken, Kunststoffen, Druckfarben und in Glasuren für Keramiken und Gläser.

- Die Pigmentteilchen weisen bevorzugt Längen und Breiten von 5 bis 20 μm sowie eine Dicke
 10 von 60 nm bis 1,0 μm auf.

„ SiO_y mit $0,95 \leq y \leq 1,80$ “ bedeutet, dass das molare Verhältnis von Sauerstoff zu Silicium im Mittelwert von 0,95 bis 1,80 beträgt.

- 15 „ SiO_x mit $0,03 \leq y \leq 0,90$ “ bedeutet, dass das molare Verhältnis von Sauerstoff zu Silicium im Mittelwert von 0,03 bis 0,90 beträgt.

Als metallisch reflektierendes Material werden bevorzugt Ag, Al, Au, Cu, Cr, Ge, Mo, Ni, Ti, Zn, deren Legierungen, Graphit, Fe_2O_3 oder MoS_2 verwendet. Besonders bevorzugt ist Al.

- 20 Die Dicke des metallischen Kerns hängt vom verwendeten metallischen Material ab und beträgt beispielsweise im Fall von Aluminium 20 bis 100 nm, vorzugsweise 40 bis 60 nm.

- Die Dicke der SiO_y -Schicht bzw. SiO_2 -Schicht (a) beträgt im allgemeinen 20 bis 500 nm,
 25 vorzugsweise 100 bis 500 nm.

Die Dicke der SiO_x -Schicht (b) beträgt im allgemeinen 5 bis 200 nm, vorzugsweise 5 bis 100 nm.

- 30 Die Dicke der SiO_2 -Schicht (c) beträgt im allgemeinen 1 bis 100 nm, vorzugsweise 5 bis 100 nm, besonders bevorzugt 10 bis 50 nm.

Die Herstellung der erfindungsgemässen Pigmente wird nachfolgend anhand von Aluminium als Metall näher erläutert:

Die mit SiO_x bzw. SiO_y beschichteten Aluminium-Flakes können grundsätzlich mittels einem Verfahren erhalten werden, das die folgenden Schritte umfasst (EP-B-990715):

- a) Aufdampfen eines Trennmittels auf einen Träger zur Erzeugung einer Trennmittelschicht,
- 5 b) Aufdampfen einer Al-Schicht auf die Trennmittelschicht,
- c) gegebenenfalls Aufdampfen einer SiO_y -Schicht auf die Al-Schicht,
- d) Aufdampfen einer SiO_x -Schicht auf die Al-Schicht oder auf die SiO_y -Schicht, sofern diese vorhanden ist,
- e) Lösen der Trennmittelschicht in einem Lösungsmittel,
- 10 f) Abtrennen der mit SiO_x beschichteten Aluminium-Flakes vom Lösungsmittel.

Die SiO_y -Schicht wird vorzugsweise aus einem Verdampfer aufgedampft, in welchem eine Beschickung, umfassend ein Gemisch aus Si und SiO_2 , SiO_y sowie Gemischen davon, vorliegt.

15

Die SiO_x -Schicht wird durch Verdampfen von Silicium in Gegenwart von Sauerstoff erzeugt, wobei das Verhältnis von Silicium zu Sauerstoff bei vorgegebener Aufdampftrate durch Einstellung des Sauerstoffpartialdrucks präzise gesteuert werden kann (siehe beispielsweise EP-A-803549).

20

Durch das vorstehend genannte Verfahren sind mit SiO_x bzw. $\text{SiO}_y/\text{SiO}_x$ beschichtete Aluminium-Flakes verfügbar, die hohe Planparallelität und definierte Dicke im Bereich von ± 10 , bevorzugt ± 5 % der durchschnittlichen Dicke aufweisen.

- 25 Die SiO_y -Schichten werden erhalten, indem ein vorzugsweise stöchiometrisches Gemisch aus feinem Silizium- und Quarzpulver (SiO_2) in einem Verdampfer, der beispielsweise in DE 4342574 C1 und in US-A-6,202,591 beschrieben ist, auf mehr als 1300°C im Hochvakuum erhitzt wird. Das Reaktionsprodukt ist Siliziummonoxidgas, das unter Vakuum direkt auf den vorbeilaufenden Träger gelenkt und dort als SiO kondensiert wird. Auch nicht-
- 30 stöchiometrische Gemische können verwendet werden. Im Verdampfer liegt eine Beschickung, umfassend ein Gemisch aus Si und SiO_2 , SiO_y , sowie Gemischen davon, vor, wobei die Teilchengröße der miteinander reagierenden Substanzen (Si und SiO_2) zweckmäßig kleiner als 0,3 mm ist. Das Gewichtsverhältnis von Si zu SiO_2 liegt zweckmäßig im Bereich von 0,15:1 bis 0,75:1 (Gewichtsteile), vorzugsweise liegt ein stöchiometrisches
- 35 Gemisch vor. Im Verdampfer vorhandenes SiO_y verdampft direkt. Si und SiO_2 reagieren bei einer Temperatur von mehr als 1300°C zu Siliziummonoxiddampf. Das auf dem Träger

- kondensierte Trennmittel kann ein Lack, ein in organischen Lösungsmitteln oder Wasser löslicher, im Vakuum verdampfbarer, organischer Stoff, wie Anthracen, Anthrachinon, Acetamidophenol, Acetylsalicylsäure, Camphersäureanhydrid, Benzimidazol, Benzol-1,2,4-tricarbonsäure, Biphenyl-2,2-dicarbonsäure, Bis(4-hydroxyphenyl)-sulfon, Dihydroxyanthrachinon, Hydantoin, 3-Hydroxybenzoesäure, 8-Hydroxychinolin-5-sulfonsäuremonohydrat, 4-Hydroxycumarin, 7-Hydroxycumarin, 3-Hydroxynaphthalin-2-carbonsäure, Isophthalsäure, 4,4-Methylen-bis-3-hydroxynaphthalin-2-carbonsäure, Naphthalin-1,8-dicarbonsäureanhydrid, Phthalimid und dessen Kaliumsalz, Phenolphthalein, Phenothiazin, Saccharin und seine Salzen, Tetraphenylmethan, Triphenylen, Triphenylmethanol oder eine
- 5 Mischung aus mindestens zwei dieser Stoffe, sein. Bevorzugt ist das Trennmittel ein wasserlösliches, im Vakuum verdampfbares, anorganisches Salz (siehe beispielsweise DE 198 44 357), wie Natriumchlorid, Kaliumchlorid, Lithiumchlorid, Natriumfluorid, Kaliumfluorid, Lithiumfluorid, Calciumfluorid, Natriumaluminiumfluorid und Dinatriumtetraborat.
- 10 Gewöhnlich wird Schritt e) bei einem Druck durchgeführt, der höher als der Druck in den Schritten a) bis d) und niedriger als der Atmosphärendruck ist.
- 15 Der bewegliche Träger weist vorzugsweise ein oder mehrere geschlossene Metallbänder mit oder ohne Polymer-Beschichtung oder ein oder mehrere Polyimid- oder Polyethylenterephthalatbänder auf. Der bewegliche Träger kann ferner ein oder mehrere um eine Achse rotierende Scheiben, Zylinder oder andere rotationssymmetrische Körper aufweisen.
- 20 Die mit SiO_x beschichteten Aluminium-Flakes werden vom Lösemittel des Trennmittels vorzugsweise durch Auswaschen und nachfolgendes Filtrieren, Sedimentieren, Zentrifugieren, Dekantieren oder Eindampfen getrennt. Die mit SiO_x beschichteten Aluminium-Flakes können ferner nach dem Auswaschen des im Lösemittel enthaltenen, gelösten Trennmittels zusammen mit dem Lösemittel eingefroren werden und nachfolgend
- 25 einem Prozess der Gefriertrocknung unterzogen werden, wobei das Lösemittel durch Sublimation unterhalb des Tripelpunktes abgetrennt wird und die trockenen Flakes in Form von einzelnen planparallelen Körpern zurückbleiben.
- Das kondensierte Silizium-Suboxid entspricht der Formel SiO_y mit $0,95 \leq y \leq 1,8$, vorzugsweise mit etwa $1 \leq y \leq 1,5$, wobei y-Werte von weniger als 1 durch einen
- 30 Siliziumüberschuss im Verdampfermaterial erzielt werden. SiO_y mit $y > 1,0$ wird erhalten indem man die Verdampfung von SiO in Gegenwart von Sauerstoff durchführt. Verdampftes SiO kondensiert, außer im Ultrahochvakuum, bei technischen Vakua von einigen 10^{-2} Pa immer als SiO_y mit $1 \leq y \leq 1,8$, insbesondere mit $1,1 \leq y \leq 1,8$, da durch Ausgasung von Oberflächen in Hochvakuumapparaturen immer noch Spuren von Wasserdampf vorhanden
- 35 sind, welche mit dem reaktionsfreudigen SiO bei Verdampfungstemperatur reagieren.

Durch sogenannte reaktive Verdampfung von SiO in reiner Sauerstoffatmosphäre können beispielsweise $\text{SiO}_{1,5}$ -Schichten erhalten werden, die im Sichtbaren nicht absorbieren und deren Brechungsindex bei 550 nm 1,55 beträgt (E. Ritter, J. Vac. Sci Technol. 3 (1966) 225). Weitgehend absorptionsfreie Schichten erhält man, wenn man die wachsende SiO_y -Schicht während des Bedampfungsvorganges mit UV-Licht bestrahlt (DE-A-1621214).

5 Im einzelnen werden auf einen an den Verdampfern unter einem Vakuum von $<0,5$ Pa vorbeilaufenden Träger, der ein geschlossenes Metallband sein kann, nacheinander ein Salz, zum Beispiel NaCl , gefolgt von Schichten aus Aluminium, gegebenenfalls SiO_y und SiO_x aufgedampft. Die aufgedampften Dicken von Salz liegen bei etwa 20 bis 100 nm, bevorzugt bei 30 bis 60 nm, die von Aluminium bei 20 bis 100 nm, die von SiO_y bei 20 bis 10
10 500 nm und die von SiO_x bei 5 bis 200 nm. Auf seinem weiteren Weg läuft der bandförmige, zu einer Schleife geschlossene Träger durch dynamische Vakuumschleusen bekannter Bauart (vgl. US 6,270,840) in einen Bereich mit 1 bis 5×10^4 Pa, vorzugsweise 600 bis 10^9 Pa und insbesondere 10^3 bis 5×10^3 Pa Druck und taucht dort in ein Ablösebad ein. Dabei
15 sollte die Temperatur des Lösungsmittels so gewählt werden, dass sein Dampfdruck im genannten Druckbereich liegt. Durch mechanische Unterstützung löst sich die Trennmittelschicht schnell auf und die Produktschicht zerfällt zu Flocken, die nun als Suspension im Lösungsmittel vorliegen. Auf seinem weiteren Weg wird das Band getrocknet und von noch anhaftenden Verunreinigungen befreit. Es läuft durch eine zweite Gruppe von
20 dynamischen Vakuumschleusen zurück in den Bedampfungsraum, wo sich der Beschichtungsprozess mit Trennmittel und Produktschicht wiederholt.

Die in beiden Fällen nun vorliegende Suspension aus Produktkörpern, Lösemittel und darin gelöstem Trennmittel wird nun nach bekannter Technik in einem weiteren Arbeitsgang getrennt. Hierzu wird der Produktkörper zuerst in der Flüssigkeit konzentriert und mehrmals mit
25 frischem Lösemittel gespült, um das gelöste Trennmittel auszuwaschen. Danach wird durch Filtrieren, Sedimentieren, Zentrifugieren, Dekantieren oder Eindampfen das Produkt, das als noch nasser Feststoff vorliegt, abgetrennt und getrocknet.

Die Abtrennung der planparallelen Körper nach dem Auswaschen an Atmosphäre lässt sich schonend durchführen, indem die auf ca. 50% Festkörpergehalt aufkonzentrierte Suspension
30 eingefroren wird und in bekannter Weise einer Gefriertrocknung bei etwa -10°C und 50 Pa Druck unterzogen wird. Zurück bleibt die trockene Substanz als Produkt, welches den Stufen der Weiterverarbeitung durch Beschichten oder chemische Umwandlung unterzogen werden kann.

Statt eines geschlossenen Bandes ist es möglich, das Produkt herzustellen, indem in einer
35 Apparatur mit einem ein Rotationskörper die Schritte der Bedampfung mit Trennmittel und SiO_y , Al und SiO_x dem Ablösen und Trocknen des Trägers nach DE-A-19952032 durchge-

führt werden. Der Rotationskörper kann hierbei eine oder mehrere Scheiben, ein Zylinder oder ein sonstiger rotationssymmetrischer Körper sein.

Verdampft man bei technischen Vakua von einigen 10^{-2} Pa Si anstatt von SiO_y , erhält man
 5 Siliciumoxide mit niedrigerem als äquimolaren Sauerstoffgehalt, das heisst SiO_x mit
 $0,03 \leq x \leq 0,90$, insbesondere $0,05 \leq x \leq 0,5$, ganz speziell $0,1 \leq x \leq 0,3$, die eine erstaunlich
 hohe Oxydationsstabilität bei hohem Brechungsindex aufweisen, auch in dünnen Schichten.
 Erhitzen in Gegenwart von Sauerstoff bei $150-500^\circ\text{C}$, bevorzugt von 175 bis 300°C , führt
 10 unerwartet zu einer sehr dünnen, zum Beispiel etwa 20 nm dicken oberflächlichen
 Siliciumdioxidschicht, was eine sehr bequeme Methode darstellt, Strukturen mit der
 Schichtenfolge $\text{Al/SiO}_x/\text{SiO}_2$ herzustellen. Werden dickere Siliciumdioxidschichten erwünscht,
 so lassen sich diese bequem wie vorstehend beschrieben durch Aufdampfen von SiO_y und
 oxidative Wärmebehandlung desselben oder durch nasschemische Beschichtung der Flakes
 mit SiO_2 herstellen.

15 Für die oxidative Wärmebehandlung werden die Plättchen beispielsweise als Schüttgut oder
 in einem Fließbett bei einer Temperatur von mehr als 200°C , vorzugsweise von mehr als
 400°C und insbesondere $500-1000^\circ\text{C}$, mit Luft oder einem anderen sauerstoffhaltigen Gas
 durchströmt. Nach mehreren Stunden ist das SiO_y zu SiO_2 oxidiert.

20 Für die nasschemische Beschichtung der Flakes mit SiO_2 kann beispielsweise das folgende
 Verfahren angewendet werden: Zu einer auf etwa $50-100^\circ\text{C}$, insbesondere $70-80^\circ\text{C}$ erhitzten
 Suspension des zu beschichtenden Materials wird eine Natronwasserglaslösung zudosiert.
 Durch gleichzeitige Zugabe von 10 %-iger Salzsäure wird der pH-Wert bei 4 bis 10,
 25 vorzugsweise bei 6,5 bis 8,5 gehalten. Nach Zugabe der Wasserglaslösung wird noch 30
 Minuten nachgerührt (siehe beispielsweise WO98/53011).

Eine erste bevorzugte Ausführungsform der vorliegenden Erfindung betrifft Pigmente, deren
 Teilchen eine Länge von $2\text{ }\mu\text{m}$ bis 5 mm , Breite von $2\text{ }\mu\text{m}$ bis 2 mm und Dicke von 50 nm bis
 $1,5\text{ }\mu\text{m}$ sowie einem Verhältnis Länge zu Dicke von mindestens 2 : 1 aufweisen, wobei die
 30 Teilchen einen Kern aus Aluminium mit zwei im wesentlichen parallelen Flächen, deren
 Abstand die kürzeste Achse des Kernes ist, enthalten, umfassend
 (b) auf einer parallelen Fläche des Kernes eine SiO_x -Schicht mit $0,03 \leq x \leq 0,90$ und
 (c) auf der SiO_x -Schicht eine SiO_2 -Schicht, wobei $0,03 \leq x \leq 0,90$, insbesondere
 $0,05 \leq x \leq 0,5$, ganz speziell $0,1 \leq x \leq 0,30$.

Die Dicke des Aluminiumkerns beträgt in dieser Ausführungsform 20 bis 100 nm, vorzugsweise 40 bis 60 nm. Die Dicke der SiO_x -Schicht (b) beträgt in dieser Ausführungsform 5 bis 200 nm, vorzugsweise 5 bis 100 nm. Die Dicke der SiO_2 -Schicht (c) beträgt in dieser Ausführungsform 5 bis 100 nm, vorzugsweise 10 bis 50 nm.

- 5 Eine zweite bevorzugte Ausführungsform der vorliegenden Erfindung betrifft Pigmente, deren Teilchen eine Länge von 2 μm bis 5 mm, Breite von 2 μm bis 2 mm und Dicke von 50 nm bis 1,5 μm sowie einem Verhältnis Länge zu Dicke von mindestens 2 : 1 aufweisen, wobei die Teilchen einen Kern aus Aluminium mit zwei im wesentlichen parallelen Flächen, deren Abstand die kürzeste Achse des Kernes ist, enthalten, umfassend
- 10 (a) auf einer parallelen Fläche des Kernes eine SiO_y -Schicht mit $0,95 \leq y \leq 1,8$,
 (b) auf der SiO_y -Schicht eine SiO_x -Schicht mit $0,03 \leq x \leq 0,90$ und
 (c) auf der SiO_x -Schicht eine SiO_2 -Schicht.

- Die SiO_y -Schicht kann wie vorstehend beschrieben in eine SiO_2 -Schicht umgewandelt werden, wodurch man zu einer dritten bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung kommt, die Pigmente betrifft, deren Teilchen eine Länge von 2 μm bis 5 mm, Breite von 2 μm bis 2 mm und Dicke von 50 nm bis 1,5 μm sowie einem Verhältnis Länge zu Dicke von mindestens 2 : 1 aufweisen, wobei die Teilchen einen Kern aus Aluminium mit zwei im wesentlichen parallelen Flächen, deren Abstand die kürzeste Achse des Kernes ist, enthalten, umfassend
- 15 (a) auf einer parallelen Fläche des Kernes eine SiO_2 -Schicht,
 (b) auf der SiO_2 -Schicht eine SiO_x -Schicht mit $0,03 \leq x \leq 0,90$ und
 (c) auf der SiO_x -Schicht eine SiO_2 -Schicht.

- Die Dicke des Aluminiumkerns beträgt in diesen Ausführungsformen 20 bis 100 nm, vorzugsweise 40 bis 60 nm. Die Dicke der SiO_y - bzw. SiO_2 -Schicht (a) beträgt in dieser Ausführungsform 20 bis 500 nm, vorzugsweise 100 bis 500 nm. Die Dicke der SiO_x -Schicht (b) beträgt in dieser Ausführungsform 5 bis 200 nm, vorzugsweise 5 bis 100 nm. Die Dicke der SiO_2 -Schicht (c) beträgt in dieser Ausführungsform 5 bis 100 nm, vorzugsweise 10 bis 50 nm.

- 30 Zur Verbesserung der physikalischen und/oder chemischen Eigenschaften der Pigmente können weitere Schichten aufgefällt werden.

- Es ist beispielsweise möglich, das fertige Pigment einer Nachbeschichtung oder Nachbehandlung zu unterziehen, die die Licht-, Wetter- und chemische Stabilität weiter erhöht, oder die Handhabung des Pigments, insbesondere die Einarbeitung in
- 35

unterschiedliche Medien, erleichtert. Als Nachbehandlung bzw. Nachbeschichtung kommen beispielsweise die in DE-A-22 15 191, DE-A-31 51 354, DE-A-32 35 017 oder DE-A-33 34 598 beschriebenen Verfahren in Frage.

- 5 Des weiteren können weitere Metalloxidschichten, insbesondere TiO_2 bzw. ZrO_2 -Schichten, zur Verbesserung der Farbeffekte vorzugsweise nasschemisch auf die Pigmente aufgebracht werden. Hierzu werden die Pigmente in Wasser suspendiert und durch Zugabe einer oder mehrerer Metallsalzlösungen bei einem für die Abscheidung der jeweiligen Metalloxide oder Metallhydroxide geeigneten pH-Wert mit einer glatten Metalloxid bzw. –
- 10 hydroxidschicht überzogen. Es können auch Mischoxid- bzw. Hydroxidschichten abgeschieden werden. Die nasschemische Beschichtung ist bekannt und beispielsweise in DE 1959988, DE 2215191, DE2244298, DE2313331, DE2522572, DE 3137808, DE3137809, DE 3151343, DE3151355, DE3211602 und DE3235017 beschrieben.
- 15 Die erfindungsgemässen Pigmente zeichnen sich durch eine sehr gleichmässige Dicke aus, wodurch eine sehr hohe Farbreinheit und Farbstärke erreicht wird.
- Die erfindungsgemässen Pigmente sind für alle üblichen Zwecke verwendbar, beispielsweise zur Färbung von Textilien, Polymeren in der Masse, Lacken (inklusive Effektlacke, auch für den Automobilbereich), Glasuren für Keramiken und Gläser und Druckfarben (inklusive
- 20 Sicherheitsdruck), oder auch zum Beispiel für Anwendungen in der Kosmetik und im Tintenstrahldruck. Diese Anwendungen sind aus Handbüchern bekannt, zum Beispiel "Industrielle Organische Pigmente" (W. Herbst und K. Hunger, VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim/New York, 2., vollständig überarbeitete Auflage, 1995).
- Bei den erfindungsgemässen Pigmenten handelt es sich um Interferenzpigmente
- 25 (Effektpigmente), die goniochromatisch sind und brillante, hochgesättigte (leuchtende) Farben ergeben. Sie eignen sich deshalb ganz besonders gut zur Kombination mit üblichen, transparenten Pigmenten, zum Beispiel mit organischen Pigmenten, wie beispielsweise Diketopyrrolopyrrolen, Chinacridonen, Dioxazinen, Perylenen, Isoindolinonen, usw. Das transparente Pigment kann dabei eine ähnliche Farbe wie das Effektpigment besitzen.
- 30 Besonders interessante Kombinationseffekte ergeben sich aber in Analogie beispielsweise zu EP 388 932 oder EP 402 943, wenn die Farbe des transparenten Pigments und diejenige des Effektpigments komplementär sind.
- Die erfindungsgemässen Pigmente können vorzüglich zum Pigmentieren von hochmolekularem organischem Material verwendet werden.
- 35 Das hochmolekulare organische Material, zur Pigmentierung dessen die erfindungsgemässen Pigmente oder Pigmentzusammensetzungen verwendet werden können, kann

- natürlicher oder künstlicher Herkunft sein. Hochmolekulare organische Materialien weisen üblicherweise Molekulargewichte von zirka 10^3 bis 10^8 g/mol oder noch mehr auf. Es kann sich zum Beispiel um Naturharze, trocknende Öle, Gummi oder Casein oder davon abgewandelte Naturstoffe, wie Chlorkautschuk, ölmodifizierte Alkydharze, Viscose, um
- 5 Celluloseether oder Ester, wie Ethylcellulose, Celluloseacetat, Cellulosepropionat, Celluloseacetobutyrat oder Nitrocellulose handeln, insbesondere aber um vollsynthetische organische Polymere (Duroplaste und Thermoplaste), wie sie durch Polymerisation, Polykondensation oder Polyaddition erhalten werden. Aus der Klasse der Polymerisationsharze seien in erster Linie Polyolefine, wie Polyethylen, Polypropylen oder Polyisobutylen,
- 10 ferner substituierte Polyolefine, wie Polymerisate aus Vinylchlorid, Vinylacetat, Styrol, Acrylnitril, Acrylsäure- oder Methacrylsäureester oder Butadien, sowie Copolymerisate der erwähnten Monomeren, wie insbesondere ABS oder EVA, genannt.
- Aus der Reihe der Polyadditionsharze und Polykondensationsharze seien die Kondensationsprodukte von Formaldehyd mit Phenolen, die sogenannten Phenoplaste, und
- 15 die Kondensationsprodukte von Formaldehyd mit Harnstoff, Thioharnstoff und Melamin, die sogenannten Aminoplaste, die als Lackharze verwendeten Polyester, und zwar sowohl gesättigte, wie zum Beispiel Alkydharze, als auch ungesättigte, wie beispielsweise Maleinatharze, ferner die linearen Polyester und Polyamide, Polyurethane oder Silikone genannt.
- 20 Die erwähnten hochmolekularen Verbindungen können einzeln oder in Gemischen, als plastische Massen oder Schmelzen vorliegen. Sie können auch in Form ihrer Monomeren oder im polymerisierten Zustand in gelöster Form als Filmbildner oder Bindemittel für Lacke oder Druckfarben vorliegen, wie zum Beispiel Leinölfirnis, Nitrocellulose, Alkydharze, Melaminharze und Harnstoff-Formaldehydharze oder Acrylharze.
- 25 Je nach Verwendungszweck erweist es sich als vorteilhaft, die erfindungsgemässen Pigmente oder Pigmentzusammensetzungen als Toner oder in Form von Präparaten zu verwenden. Je nach Konditionierverfahren oder Applikationszweck kann es von Vorteil sein, dem Pigment gewisse Mengen an texturverbessernden Mitteln vor oder nach dem Konditionierprozess zuzufügen, sofern diese keine negative Wirkung bei der Verwendung
- 30 der Pigmente zur Färbung von hochmolekularen organischen Materialien, insbesondere Polyethylen, haben. Als solche kommen insbesondere Fettsäuren mit mindestens 18 C-Atomen, beispielsweise Stearin- oder Behensäure, oder deren Amide oder Metallsalze, insbesondere Mg-Salze, sowie Weichmacher, Wachse, Harzsäuren, wie Abietinsäure, Kolophoniumseife, Alkylphenole oder aliphatische Alkohole, wie Stearylalkohol oder
- 35 aliphatische 1,2-Dihydroxyverbindungen mit 8 bis 22 C-Atomen, wie 1,2-Dodecandiol, ferner modifizierte Kolophoniummaleinatharze oder Fumarsäurekolophoniumharze in Betracht. Die

texturverbessernden Mittel werden vorzugsweise in Mengen von 0,1 bis 30 Gew.-%, insbesondere 2 bis 15 Gew.-%, bezogen auf das Endprodukt, zugesetzt.

Die erfindungsgemässen Pigmente können in beliebiger färberisch wirksamer Menge dem zu pigmentierenden hochmolekularen organischen Material zugesetzt werden. Zweckmässig ist eine pigmentierte Stoffzusammensetzung, enthaltend ein hochmolekulares organisches Material und von 0,01 bis 80 Gew.-%, bevorzugt 0,1 bis 30 Gew.-%, bezogen auf das hochmolekulare organische Material, eines erfindungsgemässen Pigments. Vielfach können in der Praxis Konzentrationen von 1 bis 20 Gew.-%, insbesondere um zirka 10 Gew.-% verwendet werden.

Bei hohen Konzentrationen, zum Beispiel solchen über 30 Gew.-%, handelt es sich meist um Konzentrate („masterbatches“), welche als Farbmittel zur Erzeugung von Pigmentierungen mit niedrigerem Pigmentgehalt verwendet werden können. Die erfindungsgemässen Pigmente weisen dabei eine ausserordentlich tiefe Viskosität in üblichen Formulierungen auf, so dass diese gut verarbeitbar bleiben.

Zur Pigmentierung von organischen Materialien können die erfindungsgemässen Pigmente einzeln gebraucht werden. Es ist aber ebenfalls möglich, zwecks Erzielung verschiedener Farbtöne oder Farbeffekte den hochmolekularen, organischen Stoffen neben den erfindungsgemässen Pigmenten andere farbgebende Bestandteile wie Weiss-, Bunt-, Schwarz- oder Effektpigmente in beliebigen Mengen zuzufügen. Werden Buntpigmente im Gemisch mit den erfindungsgemässen Pigmenten eingesetzt, so geschieht dies bevorzugt in einer Gesamtmenge von 0,1 bis 10 Gew.-%, bezogen auf das hochmolekulare organische Material. Eine besonders hohe Goniochromatizität besitzt die bevorzugte Kombination eines erfindungsgemässen Pigments mit einem Buntpigment anderer, insbesondere komplementärer Farbe, wobei Ausfärbungen des Pigments und Ausfärbungen des Buntpigments bei einem Messwinkel von 10° einen Farbtonunterschied (ΔH^*) von 20 bis 340, insbesondere von 150 bis 210 aufweisen.

Bevorzugt werden die erfindungsgemässen Pigmente mit transparenten Buntpigmenten kombiniert, wobei die transparenten Buntpigmente sowohl im gleichen Medium wie die erfindungsgemässen Pigmente als auch in einem benachbarten Medium vorhanden sein können. Beispiel einer Anordnung, wo das Effektpigment und das Buntpigment mit Vorteil in benachbarten Medien vorliegen, ist eine mehrschichtige Effektlackierung.

Die Pigmentierung der hochmolekularen, organischen Substanzen mit den erfindungsgemässen Pigmenten erfolgt beispielsweise derart, dass man ein solches Pigment, gegebenenfalls in Form eines Masterbatches, diesen Substraten unter Verwendung von Walzwerken, Misch- oder Mahlapparaten zumischt. Das pigmentierte Material wird hierauf nach an sich bekannten Verfahren wie Kalandrieren, Pressen, Strangpressen, Streichen,

Giessen oder Spritzgiessen in die gewünschte endgültige Form gebracht. Alle in der Kunststoffindustrie üblichen Zusätze, wie beispielsweise Weichmacher, Füllstoffe oder Stabilisatoren, können in gebräuchlichen Mengen vor oder nach der Einverleibung des Pigments in die Polymeren eingearbeitet werden. Insbesondere ist es erwünscht, zur

5 Herstellung von nicht starren Formlingen oder zur Verringerung ihrer Sprödigkeit den hochmolekularen Verbindungen vor der Verformung Weichmacher, zum Beispiel Ester der Phosphorsäure, Phthalsäure oder Sebacinsäure, einzuverleiben.

Zum Pigmentieren von Lacken und Druckfarben werden die hochmolekularen organischen Materialien und die erfindungsgemässen Pigmente, gegebenenfalls zusammen mit üblichen

10 Zusatzstoffen wie beispielsweise Füllmitteln, anderen Pigmenten, Siccativen oder Weichmachern, in einem gemeinsam organischen Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch fein dispergiert bzw. gelöst. Man kann dabei so verfahren, dass man die einzelnen Komponenten für sich oder auch mehrere gemeinsam dispergiert bzw. löst, und erst hierauf alle Komponenten zusammenbringt.

15 Bei der Dispergierung eines erfindungsgemässen Pigments in das zu pigmentierende hochmolekulare organische Material, sowie bei der Verarbeitung einer erfindungsgemässen Pigmentzusammensetzung, werden bevorzugt Bedingungen eingehalten, unter welchen nur relativ schwache Scherkräfte auftauchen, so dass das Pigment nicht in kleinere Bruchstücke zerteilt wird.

20 Die erhaltenen Färbungen, beispielsweise in Kunststoffen, Lacken oder Druckfarben, bevorzugt in Lacken oder Druckfarben, besonders bevorzugt in Lacken, zeichnen sich durch vorzügliche Eigenschaften aus, insbesondere durch ausgesprochen hohe Sättigung, ausgezeichneten Echtheiten und hohe Goniochromatizität.

Handelt es sich beim zu pigmentierenden hochmolekularen Material um einen Lack, so

25 handelt es sich insbesondere um einen Speziallack, ganz besonders bevorzugt um einen Automobillack.

Die erfindungsgemässen Pigmente eignen sich auch zum Schminken der Lippen oder der Haut und zum Färben der Haare oder der Nägel.

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist somit ein kosmetisches Präparat oder

30 Zubereitung, enthaltend von 0,0001 bis 90 Gew.-% eines erfindungsgemässen Pigments, insbesondere Effektpigments, und von 10 bis 99,9999 % eines kosmetisch geeigneten Trägermaterials, bezogen auf das Gesamtgewicht des kosmetischen Präparates oder der Zubereitung.

Bei diesen kosmetischen Präparaten oder Zubereitungen handelt es sich beispielsweise um

35 Lippenstifte, Wangenschminke, Make up-Grundlagen, Nagellacke und Haarshampoos.

Die erfindungsgemässen Pigmente können einzeln oder auch als Mischungen eingesetzt werden. Es ist ausserdem auch möglich, erfindungsgemässe Pigmente zusammen mit anderen Pigmenten und/oder Farbstoffen, zum Beispiel in Kombinationen wie oben beschrieben oder wie in kosmetischen Präparaten bekannt, einzusetzen.

- 5 Vorzugsweise enthalten die erfindungsgemässen kosmetischen Präparate und Zubereitungen das erfindungsgemässe Pigment in einer Menge zwischen 0,005 und 50 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des Präparates.

Als Trägermaterialien für die erfindungsgemässen kosmetischen Präparate und Zubereitungen kommen die üblichen in derartigen Mitteln verwendeten Materialien in Frage.

- 10 Die erfindungsgemässen kosmetischen Präparate und Zubereitungen können zum Beispiel in Form von Stiften, Salben, Cremes, Emulsionen, Suspensionen, Dispersionen, Pulvern oder Lösungen vorliegen. Es handelt sich beispielsweise um Lippenstifte, Mascara-Präparate, Wangenschminken, Lidschatten, Make up-Grundlagen, Eyeliners, Pulver oder Nagellacke.

- 15 Wenn die Präparate in Form von Stiften, zum Beispiel Lippenstiften, Lidschatten, Wangenschminken oder Make up-Grundlagen vorliegen, so bestehen diese Präparate zu einem erheblichen Teil aus Fettkörpern, die aus einem oder mehreren Wachsen bestehen können, beispielsweise Ozokerit, Lanolin, Lanolinalkohol, hydriertes Lanolin, acetyliertes Lanolin, Lanolinwachs, Bienenwachs, Candellilawachs, mikrokristallines Wachs, Carnaubawachs, Cetylalkohol, Stearylalkohol, Kakaobutter, Lanolinfettsäuren, Petrolatum, Vaseline, bei 25°C
20 feste Mono-, Di- oder Triglyceride oder -Fettester, Silikonwachse, wie Methyloctadecan-oxy-polysiloxan und Poly(dimethylsiloxo)stearoxysiloxan, Stearinsäuremonoethanolamin, Colophan und Derivate davon, wie Glykolabietate und Glycerinabietate, bei 25°C feste hydrierte Öle, Zuckerglyceride und Oleate, Myristate, Lanolate, Stearate und Dihydroxystearate von Calcium, Magnesium, Zirkonium und Aluminium.

- 25 Der Fettkörper kann auch aus einer Mischung aus mindestens einem Wachs und mindestens einem Öl bestehen, wobei in diesem Falle zum Beispiel die folgenden Öle in Betracht kommen: Paraffinöl, Purcellinöl, Perhydrosqualen, Süssmandelöl, Avocadoöl, Callophyllumöl, Rizinusöl, Sesamöl, Jojobaöl, Mineralöle mit einem Siedepunkt zwischen zirka 310 und 410°C, Silikonöle, wie Dimethylpolysiloxan, Linolalkohol, Linolenalkohol,
30 Oleylalkohol, Getreidekeimöle, wie Weizenkeimöl, Isopropylalanolat, Isopropylpalmitat, Isopropylmyristat, Butylmyristat, Cetylmyristat, Hexadecylstearat, Butylstearat, Decyloleat, Acetylglyceride, Octanoate und Decanoate von Alkoholen und Polyalkoholen, zum Beispiel von Glykol und Glycerin, Rizinoleate von Alkoholen und Polyalkoholen, zum Beispiel von Cetylalkohol, Isostearylalkohol, Isocetylalanolat, Isopropyladipat, Hexyllaurat und
35 Octyldodecanol.

Die Fettkörper in diesen Präparaten in Form von Stiften können allgemein bis zu 99,91 Gew.-% des Gesamtgewichtes des Präparats ausmachen.

Die erfindungsgemässen kosmetischen Präparate und Zubereitungen können zusätzlich weitere Bestandteile enthalten, wie zum Beispiel Glykole, Polyethylenglykole, Polypropylenglykole, Monoalkanolamide, ungefärbte polymere, anorganische oder organische Füllstoffe, Konservierungsmittel, UV-Filter oder andere in der Kosmetik übliche Hilfsstoffe und Additive,

Es handelt sich beispielsweise um ein natürliches oder ein synthetisches oder ein partialsynthetisches Di- oder Triglycerid, ein Mineralöl, ein Silikonöl, ein Wachs, einen Fettalkohol, einen Glycerin-Alkohol oder dessen Ester, einen lipophilen funktionellen kosmetischen Wirkstoff einschliesslich Sonnenschutzfilter oder eine Mischung dieser Stoffe.

Ein für die Hautkosmetik geeigneter lipophiler funktioneller kosmetischer Wirkstoff, eine Wirkstoffzusammensetzung oder ein Wirkstoffextrakt ist ein Inhaltsstoff oder ein Gemisch von Inhaltsstoffen, welches für die dermale oder topische Verabreichung zugelassen ist.

Beispielhaft seien aufgeführt:

- Wirkstoffe, die eine reinigende Wirkung an der Hautoberfläche und den Haaren bewirken. Hierzu zählen alle Substanzen, die der Hautreinigung dienen, wie Öle, Seifen, Syndets und feste Stoffe;
- Wirkstoffe mit deodorierender und schweisshemmender Wirkung: hierzu zählen Antiperspirantien auf Basis von Aluminium- oder Zinksalzen, Deodorantien, die bakterizide, bzw. bakteriostatische deodorierende Substanzen, wie zum Beispiel Triclosan, Hexachlorophen, Alkohole und kationaktive Substanzen enthalten, wie zum Beispiel quaternäre Ammoniumsalze und Geruchsabsorber, wie zum Beispiel ®Grillocin (Kombination von Zinkrizinoleat und verschiedenen Zusätzen) oder Triethylzitat, gegebenenfalls in Kombination mit einem Antioxidans, wie zum Beispiel Butylhydroxytoluol) oder Ionenaustauschharze;
- Wirkstoffe, die einen Schutz gegen Sonnenlicht bieten (UV-Filter): geeignete Wirkstoffe sind Filtersubstanzen ("sunscreens"), die UV-Strahlung aus dem Sonnenlicht absorbieren und in Wärme umwandeln können. Je nach der gewünschten Wirkung sind folgende Lichtschutzmittel bevorzugt: Lichtschutzmittel, die selektiv Sonnenbrand erzeugende energiereiche UV-Strahlung im Bereich von zirka 280 bis 315 nm absorbieren (UV-B-Absorber) und den längerwelligen Bereich von zum Beispiel 315 bis 400 nm (UV-A-Bereich) transmittieren, sowie Lichtschutzmittel, welche nur die längerwellige Strahlung des UV-A-Bereichs von 315 bis 400 nm absorbieren (UV-A-Absorber).

Geeignete Lichtschutzmittel sind zum Beispiel organische UV-Absorber aus der Klasse der p-Aminobenzoessäurederivate, Salicylsäurederivate, Benzophenonderivate, Dibenzoylmethanderivate, Diphenylacrylatderivate, Benzofuranderivate, polymere UV-Absorber, enthaltend eine oder mehrere silicium-organische Reste, Zimtsäurederivate, Campherderivate, Trianilino-s-triazinderivate, Phenylbenzimidazolsulfonsäure und deren Salze, Menthyl-Anthranilate, Benzotriazolderivate, und/oder ein anorganisches Mikropigment ausgewählt aus mit Aluminiumoxid oder Siliciumdioxid umhülltem TiO_2 , Zinkoxid oder Glimmer.

- 5
- 10
- Wirkstoffe gegen Insekten ("repellents") sind Mittel, die verhindern sollen, dass Insekten die Haut berühren und dort aktiv werden. Sie vertreiben die Tiere und verdampfen langsam. Am häufigsten verwendeter Repellent ist Dethyltolulamid (DEET). Weitere gebräuchliche Repellentien sind beispielweise in "Pflegekosmetik" (W. Raab und U. Kindl, Gustav-Fischer-Verlag Stuttgart/New York 1991) auf Seite 161 zu finden.
- 15
- Wirkstoffe zum Schutz gegen chemische und mechanische Einwirkungen: dazu gehören alle Stoffe, die eine Barriere zwischen der Haut und der äusseren Noxe bilden, wie zum Beispiel Paraffinöle, Silikonöle, Pflanzenöle, PCL-Produkte und Lanolin zum Schutz gegen wässrige Lösungen, Filmbildner, wie Natriumalginat, Triethanolaminalginat, Polyacrylate, Polyvinylalkohol oder Zelluloseether gegen die Einwirkung organischer Lösungsmittel, oder Substanzen auf der Grundlage von Mineralölen, Pflanzenölen oder
- 20
- Silikonölen als "Schmiermittel" gegen starke mechanische Beanspruchungen der Haut;
- Feuchthaltesubstanzen: als Feuchthalteregulatoren ("moisturizer") finden zum Beispiel folgende Stoffe Verwendung: Natriumlactat, Harnstoff, Alkohole, Sorbit, Glycerin, Propylenglykol, Kollagen, Elastin oder Hyaluronsäure;
- 25
- Wirkstoffe mit keratoplastischem Effekt: Benzoylperoxid, Retinsäure, kolloidaler Schwefel und Resorcin;
- Antimikrobielle Mittel, wie zum Beispiel Triclosan oder quaternäre Ammoniumverbindungen;
- 30
- Dermal applizierbare ölige oder öllösliche Vitamine oder Vitaminderivate: zum Beispiel Vitamin A (Retinol in Form der freien Säure oder ihrer Derivate), Panthenol, Pantothersäure, Folsäure, und Kombinationen davon, Vitamin E (Tocopherol), F; essentielle Fettsäuren; oder Niacinamid (Nicotinsäureamid);
- 35
- Placentaextrakte auf Vitaminbasis: Wirkstoffzusammensetzungen vor allem mit Vitamin A, C, E, B₁, B₂, B₆, B₁₂, Folsäure und Biotin, Aminosäuren und Fermenten sowie Verbindungen der Spurenelemente Magnesium, Silicium, Phosphor, Calcium, Mangan, Eisen oder Kupfer.

- Skin Repair Komplexe: erhältlich aus inaktivierten und desintegrierten Kulturen von Bakterien der Bifidusgruppe;
 - Pflanzen und Pflanzenextrakte: wie zum Beispiel Arnika, Aloe, Bartflechte, Efeu, Brennessel, Ginseng, Henna, Kamille, Ringelblume, Rosmarin, Salbei, Schachtelhalm oder Thymian;
 - Tierische Extrakte: wie zum Beispiel Gelée royale, Propolis, Proteine oder Thymusextrakte;
 - dermal applizierbare kosmetische Öle: Neutralöle vom Typ Miglyol 812, Aprikosenkernöl, Avocadoöl, Babassuöl, Baumwollsamenöl, Borretschöl, Distelöl, Erdnussöl, Gamma-Oryzanol, Hagebuttenkernöl, Hanföl, Haselnussöl, Johannisbeersamenöl, Jojobaöl, Kirschkerneöl, Lachsöl, Leinöl, Maiskeimöl, Makadamianussöl, Mandelöl, Nachtkerzenöl, Nerzöl, Olivenöl, Pekannussöl, Pfirsichkerneöl, Pistazienkerneöl, Rapsöl, Reiskeimöl, Rizinusöl, Safloröl, Sesamöl, Sojaöl, Sonnenblumennöl, Teebaumöl, Traubenkerneöl oder Weizenkeimöl.
- Die Präparate in Form von Stiften sind vorzugsweise wasserfrei, können jedoch in bestimmten Fällen eine gewisse Menge Wasser enthalten, die im allgemeinen jedoch 40 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des kosmetischen Präparates, nicht übersteigt.
- Wenn die erfindungsgemässen kosmetischen Präparate und Zubereitungen in Form von halbfesten Produkten, d.h. als Salben oder Cremes, vorliegen, können sie ebenfalls wasserfrei oder wässrig sein. Es handelt sich beispielsweise um Mascaras, Eyeliner, Make up-Grundlagen, Wangenschminken, Lidschatten oder Mittel zur Behandlung von Augenringen.
- Wenn diese Salben oder Cremes andererseits wässrig sind, handelt es sich insbesondere um Emulsionen des Wasser-in-Öl-Typs oder des Öl-in-Wasser-Typs, die abgesehen von dem Pigment 1 bis 98,8 Gew.-% der Fettphase, 1 bis 98,8 Gew.-% der wässrigen Phase und 0,2 bis 30 Gew.-% eines Emulgiermittels enthalten.
- Auch diese Salben und Cremes können weitere übliche Zusätze enthalten, wie z. B. Duftstoffe, Antioxidantien, Konservierungsmittel, Gelbildner, UV-Filter, Farbstoffe, Pigmente, Perlglanzmittel, ungefärbte Polymere sowie anorganische oder organische Füllstoffe.
- Wenn die Präparate in Form eines Puders vorliegen, bestehen sie im wesentlichen aus einem mineralischen bzw. anorganischen oder organischen Füllstoff, wie zum Beispiel Talkum, Kaolin, Stärke, Polyethylenpulver oder Polyamidpulver, sowie Hilfsstoffen wie Bindemitteln, Farbstoffen usw.
- Solche Präparate können ebenfalls verschiedene in der Kosmetik übliche Hilfsstoffe enthalten, wie Duftstoffe, Antioxidantien, Konservierungsmittel usw.

Wenn es sich bei den erfindungsgemässen kosmetischen Präparaten und Zubereitungen um Nagellacke handelt, so bestehen sie im wesentlichen aus Nitrocellulose und einem natürlichen oder synthetischen Polymer in Form einer Lösung in einem Lösungsmittelsystem, wobei diese Lösung gegebenenfalls andere Hilfsstoffe, wie zum Beispiel Perlglanzmittel, enthält.

Bei dieser Ausführungsform liegt das gefärbte Polymer in einem Anteil zwischen zirka 0,1 und 5 Gew.-% vor.

Die erfindungsgemässen kosmetischen Präparate und Zubereitungen können auch zum Färben von Haaren verwendet werden, wobei sie in diesem Fall in Form von Shampoos, Cremes oder Gelen eingesetzt werden, die aus den in der Kosmetikindustrie üblichen Grundstoffen aufgebaut sind, und ein erfindungsgemässes Pigment enthalten.

Die Herstellung der erfindungsgemässen kosmetischen Präparate und Zubereitungen erfolgt auf übliche Weise, beispielsweise durch Vermischen oder Verrühren der Komponenten, gegebenenfalls unter Erwärmen, so dass die Mischungen schmelzen.

Die nachfolgenden Beispiele erläutern die Erfindung ohne deren Umfang einzuschränken.

Die Temperaturen sind in Celsiusgraden angegeben, Teile sind Gewichtsteile, die Prozentangaben beziehen sich auf Gewichtsprozent, sofern nicht anders vermerkt. Gewichtsteile stehen zu Volumenteilen im Verhältnis von Kilogramm zu Liter.

Beispiele

Beispiel 1

In einer Vakuumanlage, die in wesentlichen Punkten analog der in US 6,270,840 beschriebenen Anlage konstruiert ist, werden nacheinander aus Verdampfern Natriumchlorid (90 nm, NaCl) als Trennmittel bei etwa 900°C, Aluminium (90 nm) bei etwa 700°C, SiO_y (150 nm, $y = 1,0 \pm 5 \%$) als Reaktionsprodukt von Si und SiO₂ bei 1350 bis 1550°C und Si (120 nm, SiO_x mit $x = 0,3 \pm 10 \%$) bei einer Temperatur von etwa 1600°C verdampft. Die Verdampfung erfolgt bei ca. 0,02 Pa. In der darauf folgenden Ablösung der Schichten durch Auflösung des Trennmittels wird der bedampfte Träger bei ca. 3000 Pa mit deionisiertem Wasser besprüht und unter mechanischer Hilfe mittels Abstreifern und Ultraschall behandelt. Das NaCl geht in Lösung, die Produkt-Schicht, die unlöslich ist, zerfällt in Flocken. Die Suspension wird kontinuierlich aus der Ablösekammer entfernt und bei Atmosphärendruck durch Filtrieren konzentriert und mehrmals mit entionisiertem Wasser durchspült, um vorliegende Na⁺- und Cl⁻-Ionen zu entfernen. Nach dem Trocknen und dem Mahlen werden Flakes erhalten, deren mittlerer grösster Durchmesser im Bereich von 20 bis 40 µm liegt.

Applikationsbeispiel 1

Eine Tinte mit der folgenden Zusammensetzung wird hergestellt:

Nitrocellulose A250	10,5 %
Dowanok® PM	8,5 %
Ethylacetat	19 %
Ethanol	57 %
Pigment-Flakes von Beispiel 1	5 %

- 5 Die Pigment-Flakes von Beispiel 1 werden durch Rühren in der Zusammensetzung dispergiert. Die Tinte wird auf ein Kontrastpapier in einer Nassschichtdicke von 36 μm aufgetragen. Nach dem Trocknen zeigt der deckende Druck eine brillant metallische, leicht grünliche Farbe. Die Reflexionsfarbe (CIE- L^* , C^* h) wird auf einem weissen Hintergrund bei Beleuchtung mit D_{65} -Normlicht unter einem Beobachtungswinkel von 10 Grad gemessen
- 10 (CIE (1964), Datacolor D3890).

L^* (Helligkeit) = 83, C^* (Sättigung) = 7 und h (Farbton) = 110

Beispiel 2

- 15 Die in Beispiel 1 vor der Mahlung erhaltenen Flakes, auf deren Oberfläche sich eine natürliche SiO_2 -Schicht mit einer Dicke von etwa 1 bis 2 nm befindet, können zur Erhöhung der Wetter- und Lichtehtheit als Schüttgut in einer Sauerstoffatmosphäre mehrere Stunden bei 200 bis 300 °C kalziniert werden, wobei sich die Dicke der SiO_2 -Schicht auf etwa 20 nm erhöht.

Patentansprüche

1. Pigment, dessen Teilchen eine Länge von 2 μm bis 5 μm , Breite von 2 μm bis 2 μm und Dicke von 50 nm bis 1,5 μm sowie einem Verhältnis Länge zu Dicke von
5 mindestens 2 : 1 aufweisen, wobei die Teilchen einen Kern aus einem metallisch reflektierenden Material mit zwei im wesentlichen parallelen Flächen, deren Abstand die kürzeste Achse des Kernes ist, enthalten, umfassend
(a) gegebenenfalls auf einer parallelen Fläche des Kernes eine SiO_y -Schicht mit $0,95 \leq y \leq 1,8$,
10 (b) auf einer parallelen Fläche des Kernes oder, falls eine SiO_y -Schicht vorhanden ist, auf der SiO_y -Schicht eine SiO_x -Schicht mit $0,03 \leq x \leq 0,90$ und
(c) auf der SiO_x -Schicht eine SiO_2 -Schicht.
2. Pigment, dessen Teilchen eine Länge von 2 μm bis 5 μm , Breite von 2 μm bis 2 μm und Dicke von 50 nm bis 1,5 μm sowie einem Verhältnis Länge zu Dicke von
15 mindestens 2 : 1 aufweisen, wobei die Teilchen einen Kern aus einem metallisch reflektierenden Material mit zwei im wesentlichen parallelen Flächen, deren Abstand die kürzeste Achse des Kernes ist, enthalten, umfassend
(a) gegebenenfalls auf einer parallelen Fläche des Kernes eine SiO_2 -Schicht,
20 (b) auf einer parallelen Fläche des Kernes oder, falls eine SiO_2 -Schicht vorhanden ist, auf der SiO_2 -Schicht eine SiO_x -Schicht mit $0,03 \leq x \leq 0,90$ und
(c) auf der SiO_x -Schicht eine SiO_2 -Schicht.
3. Pigment nach Anspruch 1 oder 2, wobei das metallisch reflektierende Material aus Ag, Al, Au, Cu, Cr, Ge, Mo, Ni, Ti, Zn, deren Legierungen, Graphit, Fe_2O_3 oder MoS_2
25 ausgewählt ausgewählt wird.
4. Pigment nach Anspruch 3, wobei die Dicke des Kernes 20 bis 100 nm, vorzugsweise 40 bis 60 nm beträgt.
30
5. Pigment nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei die Dicke der SiO_x -Schicht (b) 5 bis 200 nm, vorzugsweise 5 bis 100 nm beträgt.
6. Pigment nach einem der Ansprüche 1 bis 5, wobei die Dicke der SiO_y -Schicht oder
35 SiO_2 -Schicht (a) 20 bis 500 nm, vorzugsweise 100 bis 500 nm beträgt.

7. **Zusammensetzung, enthaltend ein Pigment nach einem der Ansprüche 1 bis 6.**

8. **Verwendung eines Pigments nach einem der Ansprüche 1 bis 6 in Farben, Textilien, Tintenstrahldruck, Kosmetika, Lacken, Kunststoffen, Druckfarben und in Glasuren für Keramiken und Gläser.**

Zusammenfassung:

- Die vorliegende Erfindung betrifft Pigmente, deren Teilchen eine Länge von 2 μm bis 5 mm, Breite von 2 μm bis 2 mm und Dicke von 50 nm bis 1,5 μm sowie einem Verhältnis Länge zu Dicke von mindestens 2 : 1 aufweisen, wobei die Teilchen einen Kern aus einem metallisch reflektierenden Material mit zwei im wesentlichen parallelen Flächen, deren Abstand die kürzeste Achse des Kernes ist, enthalten, umfassend
- 5 (a) gegebenenfalls auf einer parallelen Fläche des Kernes eine SiO_y -Schicht mit $0,95 \leq y \leq 2,0$, (b) auf der SiO_y -Schicht eine SiO_x -Schicht mit $0,03 \leq x \leq 0,90$ und (c) auf der SiO_x -
- 10 Schicht eine SiO_2 -Schicht, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung in Farben, Textilien, Tintenstrahldruck, Kosmetika, Lacken, Kunststoffen, Druckfarben und in Glasuren für Keramiken und Gläser.
- Die Pigmente ohne SiO_y -Schicht ergeben brillante Farben. Die Pigmente mit SiO_y -Schicht
- 15 sind deckend und zeigen brillante, metallisch aussehende Farben.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.